



TITLE:

磁性体光物性の諸問題(I)(「励起子」,研究会報告)

AUTHOR(S):

菅野, 暁

CITATION:

菅野, 暁. 磁性体光物性の諸問題(I)(「励起子」,研究会報告). 物性研究 1970, 14(1): A21-A24

ISSUE DATE:

1970-04-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/88101>

RIGHT:

となる。 $j_{q\perp}^{(1)}$ は一つの横モードを励起し、 $j_{q\perp}^{(2)}$ と $[j_{q\perp}^{(1)}, S]$ は一つの横モードと一つの縦モードを同時に励起する部分である。すなわち、 $j_q^{(1)}$ は元々 a^+ と a の一次形式、 $j_q^{(2)}$ は二次形式で書かれているのであるが、今その $q \rightarrow 0$ の時の横成分を励起子モード $b_{\nu}^{+}(q)$ を用いて表わすならば

$$\begin{aligned} j_{\perp}^{(1)} &= \sum_{\nu} J_{\nu}(0) [b_{\nu}^{+}(0)_{\perp} - b_{\nu}(0)_{\perp}] \\ j_{\perp}^{(2)} &= \sum_{\nu\nu'} \sum_{q'} J_{\nu\nu'}(q') b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} \\ &\quad \times \sum_{\nu''} [b_{\nu''}^{+}(-q') // v_{\nu''\nu'} - b_{\nu''}(q') // u_{\nu''\nu'}] \\ [j_{\perp}^{(1)}, S] &= \sum_{\nu\nu'} \sum_{q'} I_{\nu\nu'}(q') [b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} + b_{\nu}(-q')_{\perp}] \\ &\quad \times [b_{\nu'}^{+}(-q') // - b_{\nu'}(q') //] \end{aligned}$$

の形になり、 $j_{\perp}^{(1)}$ は励起状態 $b_{\nu}^{+}(0)_{\perp} |0\rangle$ と、 $j_{\perp}^{(2)}$ と $[j_{\perp}^{(1)}, S]$ は励起状態 $b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} b_{\nu'}^{+}(q') // |0\rangle$ と、基底状態 $|0\rangle$ の間に行列要素を持つ。後二者の前者に対する比は Bloch 関数の性格によつてかなり変化するが、どの励起子対についても励起子の特性的なエネルギー（束縛エネルギー、縦一横モードの分裂の大きさ、励起帯の巾）とバンドギャップの比程度の縮小を受ける。ただし、同時励起する縦モードがプラズマモードである場合は、この比はそれ程小さくはないものと思われる。なお、 $[j_{\perp}^{(1)}, S]$ の部分からの二電子励起への寄与は Hermanson らのものと本質的には同じものと思われるが、 $j_{\perp}^{(2)}$ からの寄与は新たなものであろう。

磁性体光物性の諸問題 (I)

東大物性研 菅 野 暁

磁性化合物の光物性研究は、1965年に 2-magnon, exciton+magnon 吸収が発見されて、急激に発展した。しかし、初期の頃は電子励起を励起子と

して取扱い必要がなくて、単一イオンの電子励起と考えてよかつた。磁性化合物の電子励起をフレンケル励起子として取扱い必要が生じてきたのは極く最近（1968年頃）のことである。したがって、この分野での励起子研究は未だ初歩的な段階にあると云つてよかり。ここでは、磁性化合物の励起子研究として、どのようなことが問題になつてゐるかを紹介する。

或る軌道に一定数の電子を収容して得られる多重項は、Hund 規則により highest spin multiplicity をもつたものがエネルギー最低である。このことに対応して、磁性化合物では、単一イオンの $S \rightarrow S-1$ スピン禁止遷移から作られる励起子が問題になることが多い。以下述べるフレンケル励起子は、分子場を考慮して、 $S, M_S = S \rightarrow S-1, M_S' = S-1$ 励起から作られる励起子である。

§ 1 反強磁性体における異つた副格子間の励起移動

この励起移動は $|\Delta M_S| = 2$ であるため強くスピン禁止され、反強磁性体の励起子の運動は、大ざつばに云つて各副格子の中だけに限られる。しかし、 YCrO_3 や Cr_2O_3 反強磁性体では、互に逆向きスピンを持つ副格子間の励起移動が 10cm^{-1} 程度の Davydov 分裂として観測されている。この場合、強いスピン禁止をゆるめる機構として、一つの副格子にある電子励起が、そのまわりの他の副格子に属するスピンを反対称交換相互作用により傾ける効果が一番重要であると考えられる。

〔問題点〕 (1) 励起子がこの種のスピン偏極を伴ふことの他の証拠が欲しい。(2) ここで述べた励起のスピン禁止共鳴伝達の機構は一般の反強磁性体に適用出来ると考えられるが、 MnF_2 の例等ではこの種の共鳴伝達の確率が非常に小さいことを示す実験もある。これは phonon 効果であろうか？

§ 2 スピン許容励起移動

例えば 4 箇の副格子を持つ反強磁性体では、同じスピン方向をもつ異つた副格子間のスピン許容励起移動が、Davydov 分裂として観測される。 Cr_2O_3 では 180cm^{-1} にも達する、この種の Davydov 分裂が見つかつてゐる。

〔問題点〕 Cr_2O_3 で観測されたこの種の励起移動は、その結晶構造の特

異性もあつて非常に大きいのが、一般的にはどうであろうか？ この問題は次に述べる励起子の分散の問題と関連している。

§ 3 励起子の分散

MnF_2 の ${}^6A_1 \rightarrow {}^4A_1, {}^4E$ 遷移では、 T_N 以下で3種の励起子吸収が期待されるが、その中の1種の励起子でc軸方向の -74 cm^{-1} にも達する分散が励起子-マグノン吸収を通して見つかった。

〔問題点〕 (1) c軸上にある近接イオン間の交換相互作用パラメータ J の値は 0.24 cm^{-1} で、この J を用いると 1 cm^{-1} 程度の分散しか期待出来ない。励起移動に寄与する交換相互作用をもつと定量的に調べる必要がある。(2) 問題にした3種の励起子の中、他の2種の励起子では分散が殆んどない。この理由は？ phonon効果が重要そうに思われる。

§ 4 励起子-マグノン相互作用

単一イオンの励起状態のスピン多重度 ($S_0 - 1$) が基底状態のそれ (S_0) と異なること、励起状態にあるイオンとそのまわりの基底状態にあるイオンとの交換相互作用の大きさ J' は、基底状態間のそれ J と異なること、の為に $\delta = [(S_0 - 1)/S_0][J'/J] - 1$ ではかられる相互作用が励起子とマグノン間に存在する。この相互作用は exciton-magnon 吸収線の形に大きな影響を及ぼす。又、前述の大きな分散を持つ MnF_2 の励起子では、2つの励起子-マグノン結合体による吸収ピークが励起子吸収の近くに観測されているが、この吸収には励起子-マグノン相互作用の他に励起子の分散が重要な役割を果たしている。

〔問題点〕 励起子-マグノン結合体による吸収の例がもつと欲しい。

MnF_2 ではあまりにも好都合の要因が重つているように思われる。

§ 5 exciton-magnon 吸収の温度変化

この吸収は臨界温度 T_N 以上で相当高温迄はつきり観測される(青柳氏の講演要旨参照)。磁化と異つて吸収強度は T_N ではむしろ特別な変化を示さない。この温度変化を調べることにより、スピン相関に関する新しい知識が得られる

菅野 暁

と期待される（川崎氏，望月氏の講演要旨参照）。

§ 6 複雑な exciton-magnon 吸収

今迄主として弗化物磁性体で多くの研究がなされたが，そこで見られないような複雑な吸収が酸化物磁性体で見出される。例えば YCrO_3 反強磁性体では exciton-magnon 吸収に，exciton と 2 箇の magnon が励起されているように見える吸収が観測される。しかし，今迄の理論では exciton と偶数箇の magnon を励起する確率は非常に小さい。このことに関して，いくつかの speculation を紹介する。励起状態のスピンが基底状態のスピンと異つた方向を向いていることが，少くも必要であると考えている。

§ 7 magnetic exciton

EuS ， EuSe 等で代表される稀土類イオンを含む磁性半導体で，局在した f 軌道からひろがつた d -band への遷移が光吸収，反射等で観測される。この場合， d -band の巾は相当ひろいと考えられているのに吸収の巾が比較的せまいことから，励起子効果が重要とされこのような励起子を Kasuya - Yanase は magnetic exciton と呼んだ。magnetic exciton を考えることにより，(i) $f \rightarrow d$ 吸収，又はその逆の発光ピークの red-shift（臨界温度の上から下に温度を下げると長波長側に shift）を説明出来る；(ii) 外部磁場をかけた場合の偏光スペクトルを都合よく説明出来る。但し (i) では s -band と d -band の混入効果は小さいとしなければならない。magnetic exciton は，励起電子がはじめ存在していた band (f -band) が充満帯でないと云う意味で，普通の Wannier 励起子とは異つて居り，又，励起準位が巾広い band (d -band) であると云う意味で普通の Frenkel 励起子とは異っている。更に進んだ定量的研究が望まれる。